

基于多核素的相对效率法

胡广春 向永春 伍怀龙 刘晓亚

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所 绵阳 621900)

摘要 核取证学中材料成分分析、核恐怖事件中裂变产物分析和大样品活化分析等非破坏性测量中, 探测效率刻度存在较大的挑战。本文解析了大样品多核素相对效率分析方法的基本原理, 建立了基于多元素相对效率拟合方法。并通过某特殊形状铀辐照样品中裂变产物的特征峰信息, 进行了双核素(母子体)和三核素(非母子体)效率拟合验证, 研究表明多核素自刻度方法校准因子与母子体衰变校正因子在2%误差范围内一致。研究结果为特殊形状辐射样品无损分析技术奠定了基础。

关键词 相对效率, 多核素, 最小二乘法

中图分类号 TL81, TL816⁺.9

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2015.hjs.38.030503

在核衰变过程中常伴随发射 γ 射线, γ 射线能量和半衰期是放射性核素的固有特征。在核素识别和样品成分定量中, 一般通过对放射性核素 γ 射线能量或者半衰期的测量来完成。然而在核取证学中材料成分分析、核恐怖事件中裂变产物分析和大样品活化分析等非破坏性测量中, 样品形状各异, 获取与样品几何构型一致、核素分布一致的标准样品比较困难, 因此在探测效率刻度方面存在较大的挑战, 对定量分析也带来困难。比较可行的解决方法有蒙特卡罗理论模拟方法和相对效率刻度法。目前理论模拟方法发展日臻完善, 可以很逼真地模拟探测器响应, 然而实验中源项分布、几何布局千变万化, 实验装置和方法的细微差异都会对模拟结果带来影响。相对效率刻度法是一种比较实用的方法, 它是1974年由Parker和Reilly提出的^[1], 只要样品中的组成核素无偏析(同分布), 探测效率只与入射能量有关, 而与样品尺寸、形状和探测布局无关。1992年郭太昌^[2]将该方法用于活化分析领域, 代替传统实验中给样品加入NaCl等含氯化合物的方法。

随着核技术应用的发展, 中子探测的活化分析技术、测井技术应用日益广泛, 核材料管理、核取证中对铀钚同位素分析的需求强烈, 使得探测设备化成为发展趋势。定量分析过程中的一个关键技术是探测效率的刻度, 而探测对象中很难找出发射 γ 射线能量覆盖范围宽、特征峰干扰小的单一核素, 因此采用待测样品中多个核素的特征射线进行相对效率自刻度是一种较好的解决方案, 如PC/FRAM、MGA等U、Pu丰度分析软件^[3-4]。

多元素相对效率自刻度应用比较广泛, 但是在

解析其算法方面的报道比较少。多元素相对效率自刻度的难点是样品中不同核素相对效率幅度有一定的差异。如何融合幅度差异, 有效利用多个能点数据, 拓宽能量覆盖范围, 建立多核素相对效率自刻度方法, 对基于 γ 能谱的活化分析、同位素相对比值分析有着重要意义。

1 多核素相对效率

对于一个任意构造的样品(核材料或活化材料), 一个给定核素发射的 γ 光电峰绝对效率可以表示为^[5]:

$$\varepsilon(E_j) = C(E_j) / \lambda_i N_i \eta_j^i t \quad (1)$$

或者:

$$\varepsilon(E_j) = C(E_j) / \lambda_i N \Phi \sigma \eta_j^i t \quad (2)$$

式中, $C(E_j)$ 为核素 i 发射能量为 E_j 的光电峰面积; λ_i 为同位素 i 的衰变常数; N_i 为核素 i 的原子核数; η_j^i 为同位素 i 第 j 条射线的发射概率; N 为靶核数; Φ 为中子注量率, $\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; σ 为生成核素 i 的反应截面, cm^2 ; t 为测量时间。

式(1)、(2)的绝对效率是三种因素的综合效果, 包含了探测器本征效率、几何效率和样品自吸收效率。对于同一样品, 在样品中核素同分布情况下, 来自不同核素的 γ 射线拟合的效率曲线有相同的形状, 唯一不同的是幅度差异, 其差异的本质是样品中不同核素的核子数和半衰期是不同的。根据其物理涵义对式(1)变形, 则有:

第一作者: 胡广春, 男, 1973年出生, 1998年毕业于哈尔滨工业大学, 计算数学专业, 从事核物理测量技术、计算物理等领域研究

收稿日期: 2014-01-02, 修回日期: 2014-12-13

$$\varepsilon_r(E_j) = \left[\frac{N_i \cdot \ln 2}{T_{1/2}^i} \right] \cdot \varepsilon(E_j) \quad (3)$$

式中, i 表示核素种类; j 表示核素 i 的第 j 个特征峰。由此核素 i 的第 j 个特征峰相对效率定义为:

$$\varepsilon_r(E_j) = C(E_j) / \eta_j^i t \quad (4)$$

2 多核素相对效率曲线刻度方法

对于特殊几何体源项或源项分布复杂的废物桶中裂变产物相对含量分析, 一般需要刻度相对效率曲线, 以便对体源中各种裂变产物相对定量。对于单一核素相对效率曲线通常是假定一个效率曲线模型, 然后利用该核素的多条特征射线的相对效率作为观察值, 采用最小二乘拟合的方法计算待定参数, 给出效率曲线。对于多个核素相对效率曲线, 由上述定义可知, 除了计算效率曲线模型的待定参数之外, 还需要计算一个(或多个)归一因子。不同核素之间的归一因子是计算的难点, 一般采用母子体核素, 例如 $^{140}\text{Ba} \rightarrow ^{140}\text{La}$ 或 $^{132}\text{Te} \rightarrow ^{132}\text{I}$ 等。母子体核素一般是根据衰变平衡来寻求这种归一关系, 但是在裂变事件参考时间点未知的情况下, 这种归一关系的确定比较困难, 同时为了补充能量空缺, 一般要添加一些不在同一衰变链上的核素, 那么这种关

系就更难确定。因此在最小二乘法构造方面需要做一些修正, 既考虑效率模型参数拟合, 也考虑归一因子的拟合。

假设待测样品中除了核素 i 之外, 还有另外核素 k 的射线比较丰富, 那么可以通过两个常数将核素 k 与核素 i 归一。待测样品中核素的半衰期可以通过相关的数据库获取, 即 a_2 将是一个已知常数, a_1 表征核素含量的差异, 本身是待求量, 综合考虑, 利用待定量 c 进行归一。即如果相对效率曲线样本组中增加一个核素, 相对效率拟合仅是增加一个归一因子, 依次类推, 可进行多核素扩展。下面以两个核素为例阐述多核素相对效率刻度方法, 假设效率曲线模型为线性方程^[6]:

$$f(E_j) = aE_j + b \quad (j=0,1,2,\dots) \quad (5)$$

如果观察值中有 6 个能点来自核素 i , 有 3 个能点来自于核素 k , 则我们把观察值分为两组, 按核素种类集中排列, 则 χ^2 值为:

$$\chi^2 = \sum_{j=0}^5 [y_j - (aE_j + b)]^2 + \sum_{j=6}^8 [cy_j - (aE_j + b)]^2 \quad (6)$$

对式(6)中的三个待定参数求偏导, 则可以联立三元方程组:

$$\begin{cases} \frac{\partial \chi^2}{\partial a} = -2 \sum_{j=0}^5 [y_j - (aE_j + b)] \cdot E_j - 2 \sum_{j=6}^8 [cy_j - (aE_j + b)] \cdot E_j = 0 \\ \frac{\partial \chi^2}{\partial b} = -2 \sum_{j=0}^5 [y_j - (aE_j + b)] - 2 \sum_{j=6}^8 [cy_j - (aE_j + b)] = 0 \\ \frac{\partial \chi^2}{\partial c} = 2 \sum_{j=6}^8 [cy_j - (aE_j + b)] \cdot y_j = 0 \end{cases} \quad (7)$$

三元方程组联立求解可以获取效率曲线模型的待定参数 a 、 b 和修正参数 c 。

该求解方法可以推广到效率模型为 $f(a_1, \dots, a_m; x)$, 其构造函数的参数为 m , 假设样品中可找 n 个目标核素的情况, 联立 $m+n$ 元方程组:

$$\begin{cases} \partial \chi^2 / \partial a_1 = 0 \\ \dots \\ \partial \chi^2 / \partial a_m = 0 \\ \partial \chi^2 / \partial c_1 = 0 \\ \dots \\ \partial \chi^2 / \partial c_n = 0 \end{cases} \quad (8)$$

利用样品中多个适当的核素拟合效率曲线, 可以拓展能量覆盖范围, 有效利用受干扰较小的特征峰, 提高效率曲线的准确性。方程组构造上与单核

素略有差异, 但是计算方法的复杂度基本一致。

3 多核素效率拟合方法验证

为了验证多核素相对效率拟合算法, 选用过滤器收集铀及裂变产物粉末(在中子注量率为 $5.0 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的热中子孔道辐照 20 min), 实际收集到的样品按铀估算为 0.1 mg, 过滤器过滤精度为 5 μm , 过滤样品中包含铀和固体裂变核素, 测量设备采用 Canberra 公司的高纯锗 γ 谱仪。其中测量能谱中 ^{140}Ba 、 ^{140}La 和 ^{132}I 三种裂变核素能点丰富, 能量覆盖范围宽, 是裂变产物相对含量分析中自刻度效率曲线的最佳选择, 由式(4)计算了三种核素能量与相对效率关系的测定结果如表 1, 表 1 中不确定度分析只考虑了峰面积因素。本文利用该实验数据分别进行双核素和三核素相对效率曲线刻度。

表 1 三种核素能量与相对效率关系的测定结果
Table 1 Measurement results of three kinds of nuclide energy and relative efficiency relationship.

¹⁴⁰ Ba		¹⁴⁰ La		¹³² I	
能量 Energy / keV	相对效率 Relative efficiency	能量 Energy / keV	相对效率 Relative efficiency	能量 Energy / keV	相对效率 Relative efficiency
162.66	368.46±0.11%	328.76	425.08±0.03%	522.65	11.31±0.44%
304.85	379.95±0.12%	432.49	389.02±0.07%	630.19	10.75±0.45%
423.72	346.36±0.14%	487.02	369.21±0.02%	667.72	10.31±0.07%
437.58	342.07±0.19%	751.64	313.25±0.08%	—	—
537.26	315.79±0.02%	815.77	300.38±0.02%	—	—
—	—	867.85	292.87±0.06%	—	—
—	—	919.55	284.37±0.07%	—	—
—	—	925.19	285.28±0.04%	—	—
—	—	1 596.21	213.8±0.01%	—	—
—	—	2 521.4	160.73±0.08%	—	—

本文构建的相对效率曲线模型为对数模型^[7], 模型定义见式(9):

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=0}^4 a_i \cdot (\ln E)^{1-i} \quad (9)$$

式中, a_i 为待定参数; E 为能量; ε 为相对效率。

拟合所得的相对效率曲线如图 1 所示。图 1(a) 为双核素相对效率曲线拟合, 刻度核素选择 ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰Ba 的虚拟核素为 ¹⁴⁰La。图 1(a) 的空心三角框是由实验能谱直接解析的两种核素的相对效率数据, 其中拟合曲线上的空心三角框为刻度主核素 ¹⁴⁰Ba 特征峰对应的相对效率数据, 拟合曲线之外的空心三角框为虚拟核素 ¹⁴⁰La 特征峰对应的相对效率数据, 拟合曲线上的空心圆圈为 ¹⁴⁰Ba 和 ¹⁴⁰La 两个核

素特征峰对应的相对效率归一结果, 拟合曲线即为测点处样品的相对效率曲线。图 1(b) 为三个核素的相对效率曲线拟合, 刻度核素选 ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰Ba 的虚拟核素为 ¹⁴⁰La 和 ¹³²I。图 1(b) 中空心圆圈为实验能谱直接解析的三种核素的相对效率数据, 其中拟合曲线上的空心圆圈为主核素 ¹⁴⁰Ba 特征峰对应的相对效率数据, 拟合曲线上部的空心圆圈为 ¹⁴⁰La 特征峰对应的相对效率数据, 拟合曲线下部的空心圆圈为 ¹³²I 特征峰对应的相对效率, 拟合曲线上的实心圆圈为 ¹⁴⁰Ba、¹⁴⁰La 和 ¹³²I 三个核素特征峰对应的相对效率归一结果, 拟合曲线即为测点处样品的相对效率曲线。

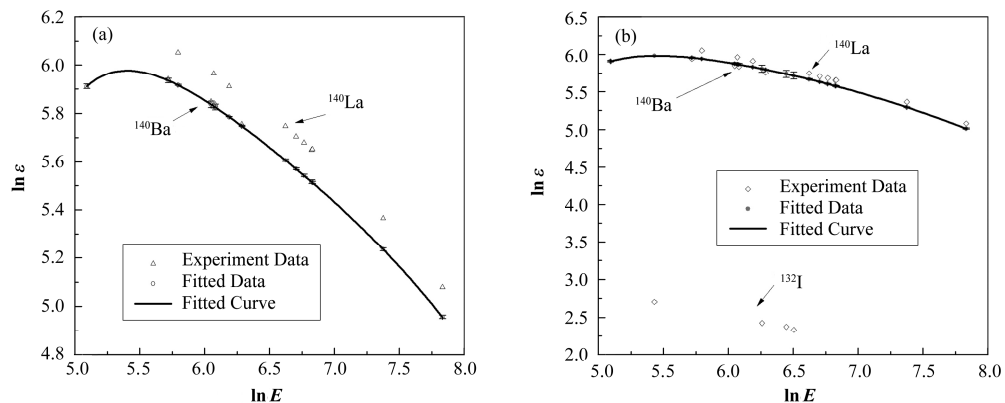


图 1 双核素(a)和三核素(b)相对效率曲线
Fig.1 Relative efficiency curve of dual-nuclide (a) and three nuclides (b).

图 1 表明多核素相对效率拟合可以有效地补充单核素能量点不足的缺陷, 满足应用要求。两次拟合参数见表 2。其中 b_i 为函数的待定参数, 它确定了相对效率曲线的形状; c_i 为虚拟核素与主核素校正系数, 通过这个参数的修正可以将虚拟核素归一

到主核素。该参数的物理意义为两种核素的活度比, 也可以间接表征同一样品中不同核素的含量比, 该参数对大样品核素含量分析具有重要意义。实际上同一样品中母子体核素可以通过衰变校正的方法进行归一。比如本文选取的 ¹⁴⁰La 和 ¹⁴⁰Ba, 样品辐照

后两种核素之间存在一定的关系^[8], 大约在 6 天母子体核素活度相等。利用母子体衰变校正, 该值为 0.990 4, 与拟合值差异小于 2%。三个核素相对效率拟合涉及两个虚拟核素, c_1 表征 ^{140}La 和 ^{140}Ba 之间的活度比, c_2 表征 ^{140}Ba 和 ^{132}I 之间的活度比。由表 2 两次拟合中裂变产物核素 ^{140}Ba 与 ^{140}La 校正系数差异小于 1.5%, 双核素和三核素曲线拟合函数与实验点相关系数为 1.0, 表明函数拟合一致性好。

表 2 相对效率刻度参数
Table 2 Calibrated parameters of relative efficiency.

拟合参数 Fitted parameters	双核素 Dual-nuclide	三核素 Three nuclides
b_0	-7.236 417	-5.871 453 5
b_1	$1.799\ 195\ 8 \times 10^2$	$1.425\ 805\ 2 \times 10^2$
b_2	$-1.634\ 987\ 7 \times 10^3$	$-1.256\ 488\ 5 \times 10^3$
b_3	$6.999\ 915\ 8 \times 10^3$	$5.326\ 097\ 7 \times 10^3$
b_4	$-1.136\ 006\ 9 \times 10^4$	$-8.638\ 752\ 4 \times 10^3$
c_1	0.975 6	0.986 6
c_2	—	2.420 7
R^2	1.0	1.0

4 结语

在大样品活化分析、铀钚同位素属性分析和特殊形状样品中关注核素含量比值分析中, 探测效率是一个重要环节。多核素相对效率刻度方法避免了样品形状、几何布局等差异因素的影响, 只要在关注核素与自刻度所用核素分布一致的情况下, 该方法都具有适用性。通过对相对效率物理内涵的分析, 构建了同一个样品中利用多个核素特征峰拟合效率曲线的数学方法, 多个核素特征峰信息, 弥补了单一核素能量覆盖不足的缺点, 用最小二乘法有效解决了相对效率刻度的问题。利用铀辐照样品分析了该方法应用于同一衰变链核素和不同衰变链核素的效率自刻度处理, 验证表明多核素自刻度方法计算的校准因子与母子体衰变校正因子一致。该方法为特殊形状辐射样品无损分析技术奠定了基础。

参考文献

- 1 Parker J L, Reilly T D. Plutonium isotopic determination by gamma-ray spectroscopy in nuclear analysis research and development program status report[C]. Report LA-5675-PR, USA: Los Alamos Scientific Laboratory, 1974
- 2 郭太昌, 刘际时. 一种高纯锗能谱测井仪相对效率刻度方法[J]. 原子能科学技术, 1992, 34(3): 52-57
GUO Taichang, LIU Jishi. A new method for efficiency calibration of borehole logging equipment with HPGE detector[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1992, 34(3): 52-57
- 3 Clark D L, Wang F F. Uranium and plutonium isotopic analysis using MGA[C]. UCRL-JC-131168, Berkeley, CA USA: University of California Radiation Laboratory, 1998
- 4 Barr T L, Sampson T E. Statistical evaluation of FRAM γ -ray isotopic analysis data[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2005, 62: 931-940
- 5 龚建, 郝樊华, 熊宗华. 相对效率法同位素丰度分析研究[J]. 核电子学与探测技术, 2001, 21(4): 287-289
GONG Jian, HAO Fanhua, XIONG Zonghua. Analyzing isotopic abundance by method of relative efficiency[J]. Nuclear Electronics & Detection Technology, 2001, 21(4): 287-289
- 6 王国荣(译). 数值分析[M]. 北京: 机械工业出版社, 2005
WANG Guorong (Transition). Numerical analysis[M]. Beijing: China Machine Press, 2005
- 7 胡广春, 郝樊华. ^{235}U 核裂变后 3-5 MeV γ 射线时间响应的实验研究[J]. 核技术, 2007, 30(6): 491-494
HU Guangchun, HAO Fanhua. Experimental study of 3-5 MeV γ -ray intensity from ^{235}U fission products at different times after fission[J]. Nuclear Techniques, 2007, 30(6): 491-494
- 8 张利兴, 朱凤蓉. 核试验放射性核素监测核查技术[M]. 北京: 国防工业出版社, 2006
ZHANG Lixing, ZHU Fengrong. Inspection and verification technology of radio nuclide in nuclear test[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2006

Relative efficiency method based on multi-nuclide

HU Guangchun XIANG Yongchun WU Huailong LIU Xiaoya

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract Background: In the non-destructive measurement, including the analysis of material composition of nuclear forensics, fission product analysis of nuclear terrorism event and large sample activation analysis, there is a big challenge for the detection efficiency calibration. **Purpose:** This paper analyzed the basic principle of the relative efficiency method of radiation samples with multi-nuclide, and established the relative efficiency fitting method for multi-nuclide. **Methods:** Through the peak information of the fission products from a special irradiated uranium sample, the efficiency fitting of dual-nuclide (parent-daughter nuclides) and three nuclides (no parent-daughter nuclides) was verified. **Results:** The study showed that the calibration factor of the self-calibration method with multi-nuclide was consistent with the factor of the parent-daughter nuclides' decay in the error range of 2%. **Conclusion:** Results laid the foundation for the non-destructive analysis techniques of the radioactive samples with special shapes.

Key words Relative efficiency, Multi-nuclide, Least square method

CLC TL81, TL816+.9